

Process for the preparation of 3-methyl-1,3,5-triazinetriones

Patent Number: DE3516631

Publication date: 1986-11-13

Inventor(s): LANTZSCH REINHARD DR (DE)

Applicant(s): BAYER AG (DE)

Requested
Patent: ☐ DE3516631

Application
Number: DE19853516631 19850509



Priority Number
(s): DE19853516631 19850509

IPC
Classification: C07D251/32; C07D251/34; C07D403/10; C07D403/12; C07D413/10;
C07D413/12; C07C127/24; C07D417/10; C07D417/12; C07D263/58;
C07D277/68; C07D241/44

EC
Classification: C07D251/34, C07C323/20, C07C275/70

Equivalents:

Abstract

The present invention relates to a process for the preparation of 3-methyl-1,3,5-triazinetriones of the formula (I)  in which R represents optionally substituted aryl, which comprises heating 4-methoxy-1,3,5-triazinediones of the formula (II)  in which R has the abovementioned meaning, at temperatures between 150 DEG C and 250 DEG C, if appropriate in the presence of diluents, and to novel intermediates for carrying out this process, and to a process for their preparation.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

①9 BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑪ **DE 35 16 631 A 1**

②1 Aktenzeichen: P 35 16 631.2
②2 Anmeldetag: 9. 5. 85
④3 Offenlegungstag: 13. 11. 86

⑤1 Int. Cl. 4:

C 07 D 251/32

C 07 D 251/34
C 07 D 403/10
C 07 D 403/12
C 07 D 413/10
C 07 D 413/12
C 07 C 127/24
C 07 D 417/10
C 07 D 417/12
C 07 D 263/58
C 07 D 277/68
C 07 D 241/44

DE 35 16 631 A 1

⑦1 Anmelder:

Bayer AG, 5090 Leverkusen, DE

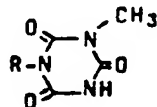
⑦2 Erfinder:

Lantzsch, Reinhard, Dr., 5600 Wuppertal, DE

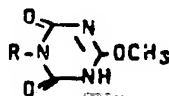
⑤4 Verfahren zur Herstellung von 3-Methyl-1,3,5-triazintrionen

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von 3-Methyl-1,3,5-triazin-trionen der Formel (I),

Zwischenprodukte zur Durchführung dieses Verfahrens und Verfahren zu deren Herstellung.



in welcher
R für gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,
das dadurch gekennzeichnet ist, daß man 4-Methoxy-1,3,5-triazin-dione der Formel (II)



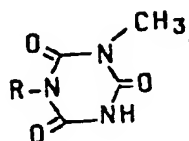
in welcher
R die oben angegebene Bedeutung hat,
gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln bei
Temperaturen zwischen 150° C und 250° C erhitzt, sowie neue

DE 35 16 631 A 1

5 Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von 3-Methyl-1,3,5-triazin-
trionen der Formel (I),

10



(I)

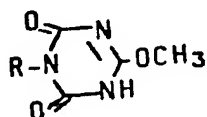
15

in welcher

R für gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,

das dadurch gekennzeichnet ist, daß man 4-Methoxy-
1,3,5-triazin-dione der Formel (II)

20



(II)

25

in welcher

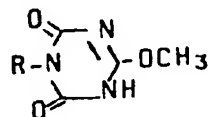
R die oben angegebene Bedeutung hat,

30

gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln
bei Temperaturen zwischen 150°C und 250°C erhitzt.

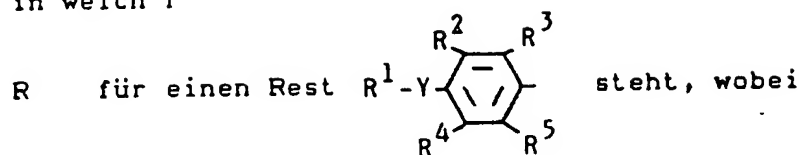
2. 4-Methoxy-1,3,5-triazin-dione der Formel (II)

35

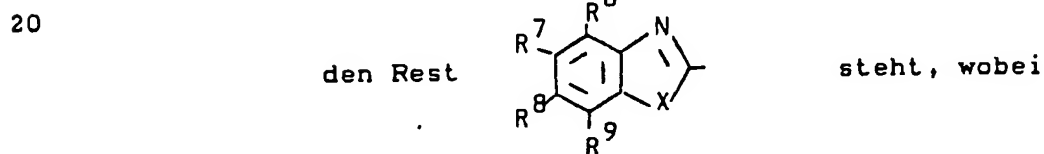


(II)

5 in welcher



10 R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen,
Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkyl-
thio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halo-
genalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio,
15 Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl,
Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbo-
nyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonyl-
amino substituiertes Phenyl steht, oder
für



25 R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden
sind und für Wasserstoff,
Halogen, Alkyl, Alkoxy,
Halogenalkyl oder Halo-
genalkoxy stehen und

30 X für Sauerstoff, Schwefel
oder eine Gruppe -N=CH-
steht,

35 R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder
Alkoxy stehen und

5 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierungen -CO-, -SO-, -SO₂-, -CH₂-, -CH₂O- oder -OCH₂- steht.

10 3. Verfahren zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (II),



15

in welcher

R für einen Rest R^1 -Y- steht, wobei

20

R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonylamino substituiertes Phenyl steht, oder für

30

den Rest steht, wobei

35

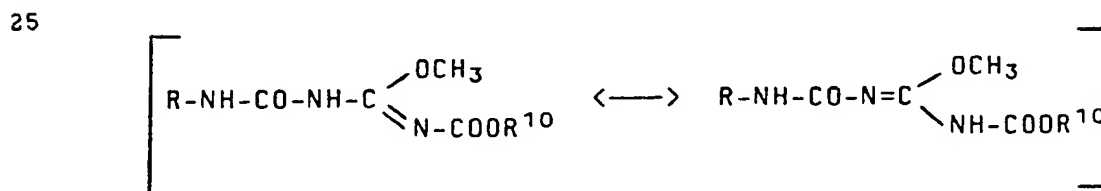
5 R^6, R^7, R^8 und R^9 gleich oder verschied n
 sind und für Wasserstoff,
 Halogen, Alkyl, Alkoxy,
 Halogenalkyl oder Halo-
10 genalkoxy stehen und

 X für Sauerstoff, Schwefel
 oder eine Gruppe $-N=CH-$
 steht,

15 R^2, R^3, R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind
 und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder
 Alkoxy stehen und

 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppie-
20 rungen $-CO-$, $-SO-$, $-SO_2-$, $-CH_2-$, $-CH_2O-$
 oder $-OCH_2-$ steht,

dadurch gekennzeichnet, daß man Isobiuret-Derivate
der Formel (III)



30 (III)

in welcher

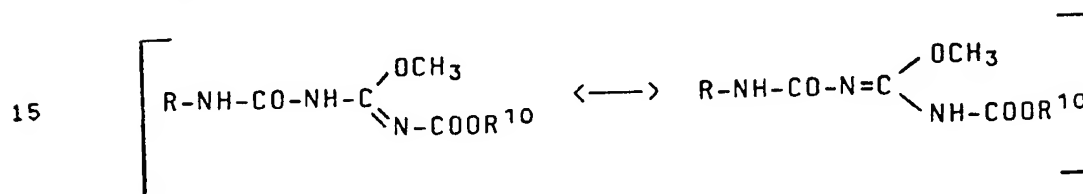
35

5 R die oben angegebenen Bedeutungen hat und

 R¹⁰ für C₁-C₄-Alkyl steht,

10 in Gegenwart von starken Basen und gegebenenfalls in
Gegenwart von Verdünnungsmitteln umgesetzt.

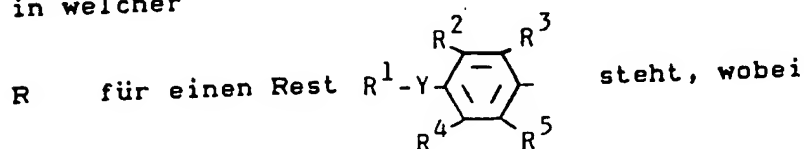
4. Isobiuret-Derivate der Formel (III)



(III)

20

in welcher



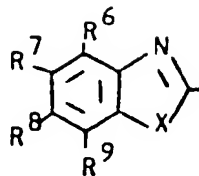
25

R¹ für einen gegebenenfalls durch Halogen,
Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkyl-
thio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halo-
genalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio,
Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl,
Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbo-
nyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonyl-
amino substituiertes Phenyl steht, oder
für

35

5

den Rest



steht, wobei

10

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy stehen und

15

X für Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe $-N=CH-$ steht,

20

R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder Alkoxy stehen,

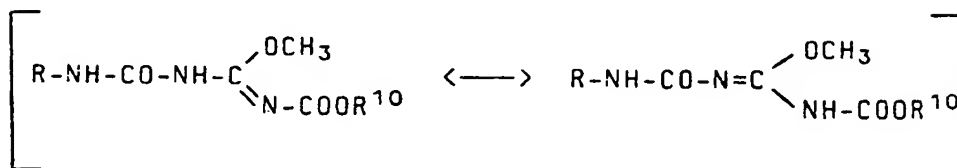
25

Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierungen $-CO-$, $-SO-$, $-SO_2-$, $-CH_2-$, $-CH_2O-$ oder $-OCH_2-$ steht und

R^{10} für C_1-C_4 -Alkyl steht.

30

5. Verfahren zur Herstellung der neuen Isobiuret-Derivate der Formel (III)

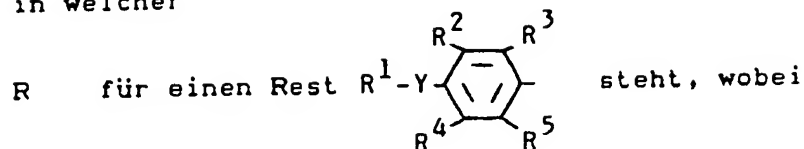


35

(III)

5

in welcher

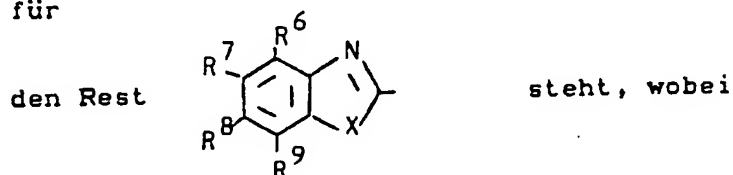


10

R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonylamino substituiertes Phenyl steht, oder für

15

20



25

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy stehen und

30

X für Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe $-N=CH-$ steht,

35

5 R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder
Alkoxy stehen,

10 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppier-
ungen $-CO-$, $-SO-$, $-SO_2-$, $-CH_2-$, $-CH_2O-$
oder $-OCH_2-$ steht und

R^{10} für C_1 - C_4 -Alkyl steht,

15 dadurch gekennzeichnet, daß man

(α) Isocyanate der Formel (IV)

20 $RNCO$ (IV)

in welcher

R die oben angegebenen Bedeutungen hat,

25 mit Isoharnstoffen der Formel (V)

30
$$\begin{array}{c} OCH_3 \\ | \\ HN=C-NH-COOR^{10} \end{array}$$
 (V)

in welcher

R^{10} die oben angegebenen Bedeutungen hat,

35

10 oder

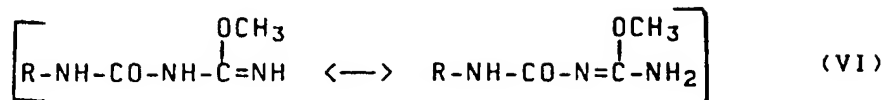
15

$$\left[\text{R-NH-CO-NH-C} \begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\ | \\ \text{=NH} \end{array} \longleftrightarrow \text{R-NH-CO-N}=\text{C} \begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\ | \\ \text{-NH}_2 \end{array} \right] \quad (\text{VI})$$

25 Hal-COOR¹⁰ (VII)

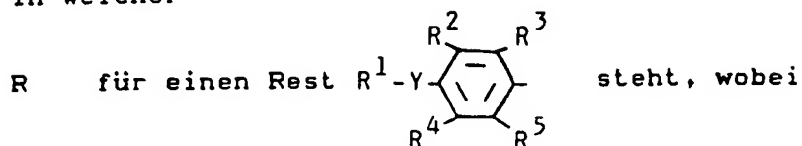
35 gegebenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren
und gegebenfalls in Gegenwart von Verdünnungs-
mitteln umgesetzt.

5 6. Isobiur te d r Formel (VI)



10

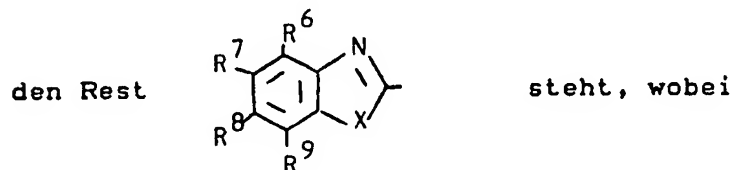
in welcher



15

R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen,
Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkyl-
thio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halo-
genalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio,
Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl,
Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbo-
nyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonyl-
amino substituiertes Phenyl steht, oder
für

25



30

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden
sind und für Wasserstoff,
Halogen, Alkyl, Alkoxy,
Halogenalkyl oder Halo-
genalkoxy stehen und

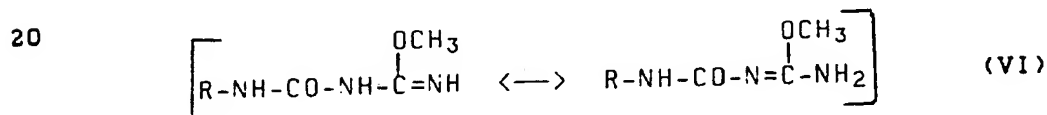
35

5 X für Sauerstoff, Schwefel
oder eine Gruppe -N=CH-
steht,

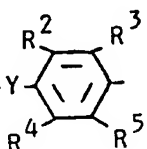
10 R², R³, R⁴ und R⁵ gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder
Alkoxy stehen und

15 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppier-
ungen -CO-, -SO-, -SO₂-, -CH₂-, -CH₂O-
oder -OCH₂- steht.

7. Verfahren zur Herstellung der Isobiurete der Formel
(VI),



in welcher

25 R für einen Rest $\text{R}^1\text{-Y}$  steht, wobei

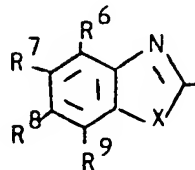
30 R¹ für einen gegebenenfalls durch Halogen,
Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkyl-
thio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halo-
genalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio,
Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl,
Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbo-
35 nyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonyl-

5

amino substituiertes Phenyl steht, oder
für

10

den Rest



steht, wobei

15

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden
sind und für Wasserstoff,
Halogen, Alkyl, Alkoxy,
Halogenalkyl oder Halo-
genalkoxy stehen und

20

X für Sauerstoff, Schwefel
oder eine Gruppe $-N=CH-$
steht,

25

R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder
Alkoxy stehen und

Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppier-
ungen $-CO-$, $-SO-$, $-SO_2-$, $-CH_2-$, $-CH_2O-$
oder $-OCH_2-$ steht,

30

dadurch gekennzeichnet, daß man Isocyanate der Formel
(IV)

RNCO

(IV)

35

5 in welcher

R die oben angegebenen Bedeutungen hat,

10 mit 2-Methylisoharnstoff der Formel (VII)



15 oder deren entsprechenden Säureadditions-Salzen, gegebenenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umgesetzt.

20

25

30

35

5 BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 5090 L verkusen, Bayerwerk
Konzernverwaltung RP **28. Mai 1985**
Patentabteilung Rt/bo/c
IVb

10

Verfahren zur Herstellung von 3-Methyl-1,3,5-triazin-
trionen

15

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von
3-Methyl-1,3,5-triazin-trionen, Zwischenprodukte welche
für die Durchführung des Verfahrens verwendet werden kön-
20 nen, sowie Verfahren zur Herstellung solcher Zwischenpro-
dukte.

Es ist bereits bekannt, daß durch Umlagerungen von Verbin-
dungen mit cyclischer Isoharnstoff-Struktur, die entspre-
25 chenden Harnstoffe hergestellt werden können. Die Ausbeu-
ten dieser Umlagerungen sind jedoch so gering, daß sie im
präparativen Maßstab nicht angewendet worden sind (vgl.
z.B. J. Chem. Soc. 1965, 4911; Chem. Ber. 19. 2067 ff und
J. Chem. Soc. 1957, 1830).

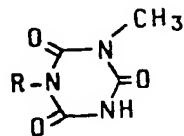
30

Die vorliegende Erfindung betrifft:

1. Ein Verfahren zur Herstellung von 3-Methyl-1,3,5-tri-
azin-trionen der Formel (I)

35

5



(I)

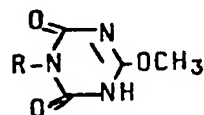
10

in welcher

R für gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,

15

das dadurch gekennzeichnet ist, daß man 4-Methoxy-1,3,5-triazin-dione der Formel (II)



(II)

20

in welcher

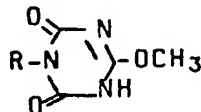
R die oben angegebene Bedeutung hat,

25

gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln bei Temperaturen zwischen 150°C und 250°C erhitzt.

2. Neue 4-Methoxy-1,3,5-triazin-dione der Formel (II)

30



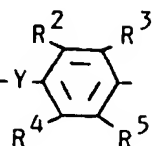
(II)

35

in welcher

5

R für einen Rest R^1-Y steht, wobei

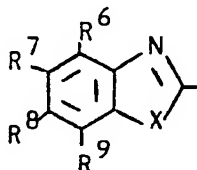


10

R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfonylamino substituiertes Phenyl steht, oder für

15

den Rest



steht, wobei

20

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkoxy stehen und

25

X für Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe $-N=CH-$ steht,

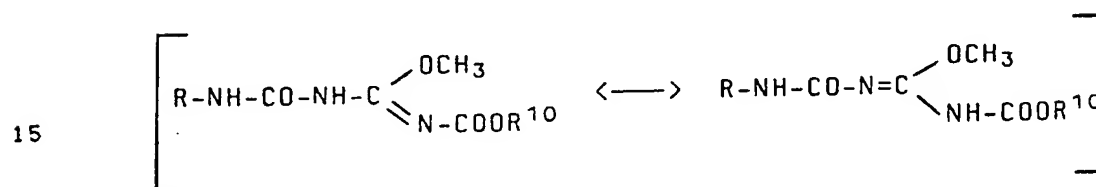
30

R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder Alkoxy stehen und

35

5 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierungen -CO-, -SO-, -SO₂-, -CH₂-, -CH₂O- oder -OCH₂- steht.

10 3. Ein Verfahren zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (II), das dadurch gekennzeichnet ist, daß man Isobiuret-Derivate der Formel (III)



(III)

20 in welcher

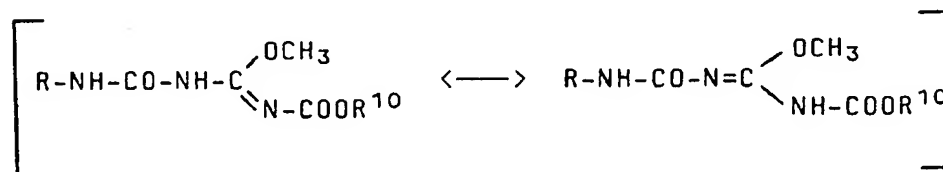
R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat und

R¹⁰ für C₁-C₄-Alkyl steht,

25

in Gegenwart von starken Basen und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umgesetzt.

30 4. Neue Isobiuret-Derivate der Formel (III)



(III)

5 in welcher

R und R¹⁰ die unter (3) angegebenen Bedeutungen haben.

10 5. Ein Verfahren zur Herstellung der neuen Isobiuret-Derivate der Formel (III), das dadurch gekennzeichnet ist, daß man

(α) Isocyanate der Formel (IV)

15

RNCO

(IV)

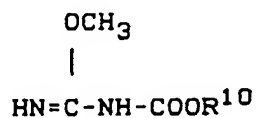
in welcher

20

R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat,

mit Isoharnstoffen der Formel (V)

25



(V)

in welcher

30

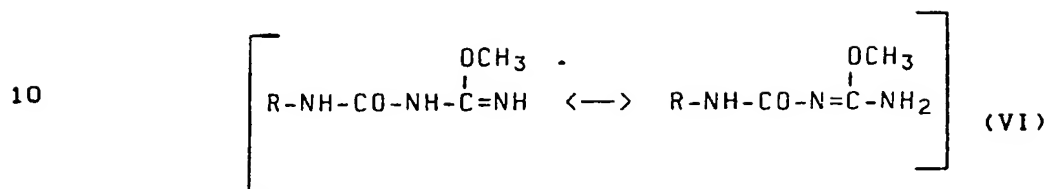
R¹⁰ die oben angegebenen Bedeutungen hat,

oder deren Säureadditions-Salzen, gegebenenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umgesetzt,

35

5 oder

(β) Isobiurete der Formel (VI)



15 in welcher

R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat,

mit Halogeniden der Formel (VII)

20



in welcher

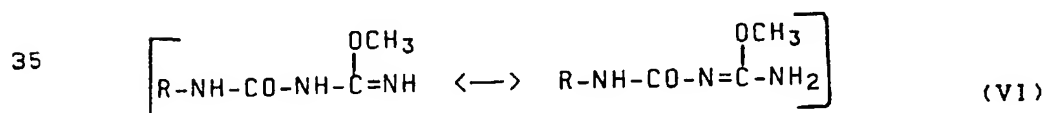
25 R^{10} die oben angegebenen Bedeutungen hat und

Hal für Halogen steht,

30

gegebenenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren
und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungs-
mitteln umgesetzt.

6. Neue Isobiurete der Formel (VI)



5 in welcher

R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat.

7. Verfahren zur Herstellung der Isobiurete der Formel
10 (VI), das dadurch gekennzeichnet ist, daß man Iso-
cyanate der Formel (IV)



15 in welcher

R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat,

20 mit 2-Methylisoharnstoff der Formel (VII)



25 oder deren entsprechenden Säureadditions-Salzen, ge-
gebenenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren und ge-
gebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln um-
setzt.

30 Überraschenderweise lassen sich mit Hilfe des erfindungs-
gemäßen Verfahrens (1), die Verbindungen der Formel (I)
in guter Reinheit und mit hohen Ausbeuten herstellen, ob-
wohl nach dem Stand der Technik ähnliche Umlagerungen be-
kannt sind, die jedoch sehr schlechte Ausbeuten liefern
35 und für eine Anwendung im präparativem Maßstab ungeeignet

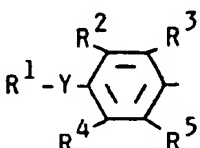
5 sind. Weiterhin sind die als Zwischenprodukte einzusetzen-
den Verbindungen stabil und können gut gelagert werden.

Mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens (1) werden vor-
zugsweise diejenigen Verbindungen der Formel (I) herge-
10 stellt, in welcher

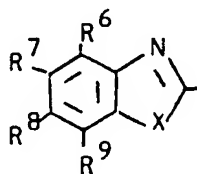
R für gegebenenfalls einfach oder mehrfach substituier-
tes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen, wie Phenyl
oder Naphthyl, vorzugsweise Phenyl steht.

15

Besonders bevorzugt werden diejenigen Verbindungen herge-
stellt, in welcher

20 R für einen Rest  steht, wobei

R¹ für einen gegebenenfalls durch Halogen, Cyano,
Nitro, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkyl-
25 sulfinyl, Alkylsulfonyl, Halogenalkyl, Halogen-
alkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfonyl,
Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl,
Aminocarbonyl, Alkoxycarbonylamino und/oder Sul-
fonylamino substituiertes Phenyl steht, oder
30 für

den Rest  steht, wobei

35

- 5 R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen,
Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl
oder Halogenalkoxy stehen und
- 10 X für Sauerstoff, Schwefel oder
eine Gruppierung $-N=CH-$
steht,
- 15 R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und
für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder Alkoxy
stehen und
- 20 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierungen
 $-CO-$, $-SO-$, $-SO_2-$, $-CH_2-$, $-CH_2O-$ oder $-OCH_2-$
steht.

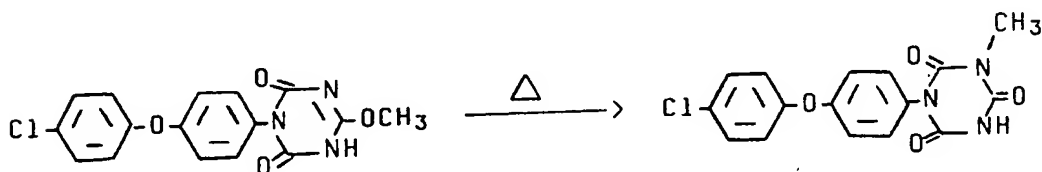
Im einzelnen seien folgende Verbindungen der Formel (I)
genannt:

- 25 1-[4-[4-Phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dichlor-4-(4-cyano-
phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dichlor-4-(4-trifluormethylsul-
fonyl-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dimethyl-4-(4-trifluor-
methylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3-Chlor-4-(4-tri-
fluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3-Methoxy-4-(4-
30 trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 1-[2-Chlor-4-(4-
trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]- und 1-[3-Methyl-
4-(5,6-dichlor-2-benzthiazolyloxy)-phenyl]-3-methyl-1,3,5-
triazin-2,4,6-trion.

35

5 Verwendet man beispielsweise für das erfindungsgemäße Verfahren (1) als Ausgangsstoff 1-[4-(4-Chlorphenoxy)-phenyl]-4-methoxy-1,3,5-triazin-2,6(1H,5H)-dion, so kann die Reaktion durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

10

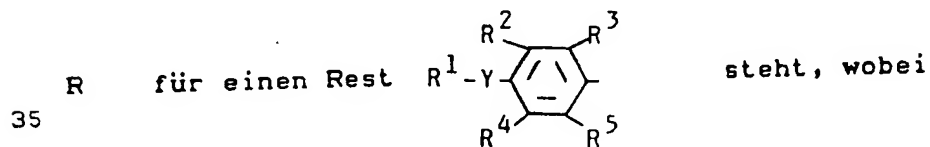


15

20 Die als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren (1) einzusetzenden Verbindungen sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel hat R vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, welche bereits für Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt genannt wurden.

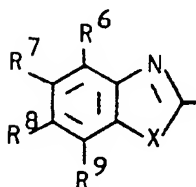
25 Die Verbindungen der Formel (II) sind zum Teil bekannt (vgl. z.B. US-PS 3 951 971 und US-PS 3 989 501). Neu sind die Verbindungen der Formel (II) in welcher R die unter (2) angegebenen Bedeutungen hat.

30 Bevorzugt sind die neuen Verbindungen der Formel (II), in welcher



5 R^1 für einen gegebenenfalls durch Halogen, wie
Fluor, Chlor oder Brom, Cyano, Nitro, Amino, C_1 -
10 C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -
Alkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl, Halogen-
 C_1 - C_4 -Alkyl, Halogen- C_1 - C_4 -Alkoxy, Halogen-
15 C_1 - C_4 -Alkylthio, Halogen- C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl,
Hydroxycarbonyl, C_1 - C_4 -Alkylcarbonyl, C_1 - C_4 -
Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl, C_1 - C_4 -Alkoxyar-
bonylamino und/oder Sulfonylamino substituiertes
Phenyl steht oder für den Rest

15



steht, wobei

20

R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Halogen,
wie Fluor, Chlor oder Brom,
25 C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy,
Halogen- C_1 - C_4 -Alkyl oder Halo-
gen- C_1 - C_4 -Alkoxy stehen und

25

30 X für Sauerstoff, Schwefel oder
eine Gruppierung $-N=CH-$
steht,

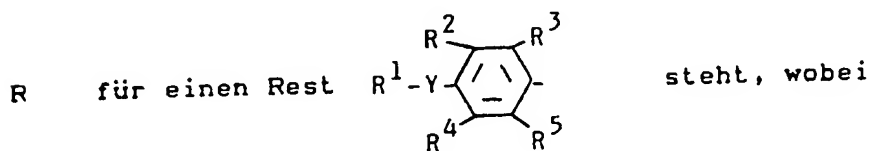
30

R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und
für Wasserstoff, Halogen, wie Fluor, Chlor oder
35 Brom, C_1 - C_4 -Alkyl oder C_1 - C_4 -Alkoxy stehen und

35

5 Y für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierungen
-CO-, -SO-, -SO₂-, -CH₂-, -CH₂O- oder -OCH₂-
steht.

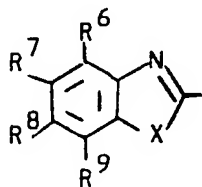
Besonders bevorzugt sind die neuen Verbindungen der Formel
10 (II), in welcher



15

R¹ für einen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor,
Brom, Cyano, Nitro, Amino, C₁-C₂-Alkyl, C₁-C₂-
Alkoxy, C₁-C₂-Alkylthio, C₁-C₂-Alkylsulfinyl,
C₁-C₂-Alkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₂-Alkyl, Halo-
20 gen-C₁-C₂-Alkoxy, Halogen-C₁-C₂-Alkylthio, Halo-
gen-C₁-C₂-Alkylsulfonyl, Hydroxycarbonyl, C₁-C₂-
Alkylcarbonyl, C₁-C₂-Alkoxycarbonyl, Aminocarbo-
nyl, C₁-C₂-Alkoxycarbonylamino und/oder Sulfo-
nylamino substituiertes Phenyl steht oder für
25 den Rest

25



steht, wobei

30

R⁶, R⁷, R⁸ und R⁹ gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Fluor,
Chlor, Brom, C₁-C₂-Alkyl, C₁-

35

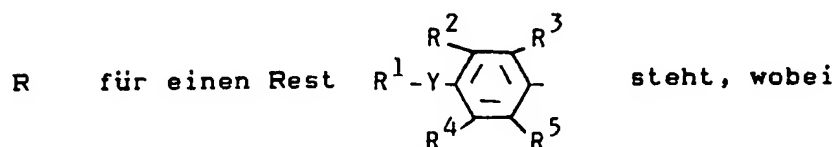
5 C₂-Alkoxy, Halogen-C₁-C₂-Alkyl
oder Halogen-C₁-C₂-Alkoxy
stehen und

10 X für Sauerstoff, Schwefel oder
eine Gruppierung -N=CH-
steht,

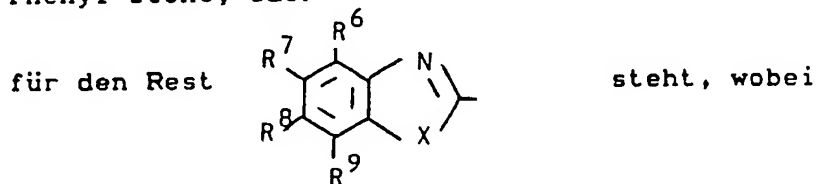
15 R², R³, R⁴ und R⁵ gleich oder verschieden sind und
für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₂-Alkyl
oder C₁-C₂-Alkoxy stehen und

Y für Sauerstoff oder Schwefel steht.

20 Ganz besonders bevorzugt sind die neuen Verbindungen der
Formel (II), in welcher



25 R¹ für einen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor,
Brom, Cyano, Nitro, Trifluormethyl, Trifluor-
methoxy, Trifluormethylthio, Trifluorethylthio
und/oder Trifluormethylsulfonyl substituiertes
30 Phenyl steht, oder



35

5 R^6 , R^7 , R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind
und für Wasserstoff, Fluor,
Chlor, Brom, Methyl, Methoxy,
Trifluormethyl, Dichlorfluor-
methyl, Chlordifluormethyl,
10 Trichlormethyl oder Trifluor-
methoxy stehen und

 X für Sauerstoff, Schwefel oder
eine Gruppierung $-N=CH-$
15 steht,

R^2 , R^3 , R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und
für Wasserstoff, Chlor, Methyl oder Methoxy
stehen und
20

 Y für Sauerstoff oder Schwefel steht.

Im einzelnen seien folgende Verbindungen der Formel (II)
genannt:

25 1-[4-(4-Phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dichlor-4-(4-cyano-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dichlor-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3,5-Dimethyl-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3-Chlor-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 1-[3-Methoxy-4-(4-trifluoromethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 1-[2-Chlor-4-(4-trifluoromethylthio-phenoxy)-phenyl]- und 1-[3-Methyl-4-(5,6-dichlor-2-benzthiazolyloxy)-phenyl]-4-methoxy-1,3,5-triazin-
30 2,6-(1H,5H)-dien.

35

5 Die neuen Verbindungen der Formel (II) lassen sich gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren (3) (oben) herstellen (siehe weiter unten).

10 Das erfindungsgemäße Verfahren (1) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) kann in Gegenwart eines Verdünnungsmittels oder ohne Verdünnungsmittel durchgeführt werden.

15 Als Verdünnungsmittel kommen vorzugsweise alle hochsiedenden Verdünnungsmittel in Frage. Hierzu gehören insbesondere gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie z.B. Tetralin, Dekalin, Xylol, Trimethylbenzol und o-Dichlorbenzol, Ether wie z.B. Anisol oder o-, m-, p-Dimethoxybenzol, Diethylenglykoldimethylether, Tetraethylenglykoldimethylether sowie Diethylenglykoldibutylether.

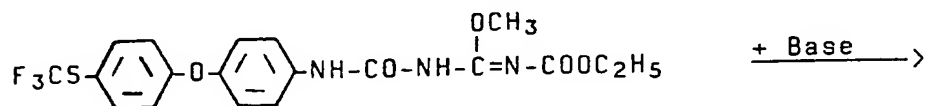
25 Das erfindungsgemäße Verfahren (1) wird im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 150°C und 250°C durchgeführt. Vorzugsweise wird bei der Siedetemperatur des verwendeten Verdünnungsmittels gearbeitet.

30 Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (1) wird die Ausgangsverbindung der Formel (II) in Gegenwart eines Verdünnungsmittels vorzugsweise bei der Siedetemperatur des Lösungsmittels gegebenenfalls mehrere Stunden erhitzt. Die Aufarbeitung erfolgt durch Abdestillieren des Lösungsmittels oder Abfiltrieren und gegebenenfalls weitere Reinigung des Reaktionsproduktes durch Umkristallisation.

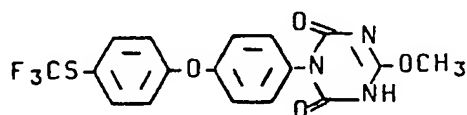
35

- 5 Verwendet man beispielsweise für das erfindungsgemäße Verfahren (3) als Ausgangsstoff 4-[4-(4-Trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-1-ethoxycarbonyl-2-methyl-1-isobiuret und Natriummethylat als Base, so kann die Reaktion durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

10



15



- Die als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren (3) einzusetzenden Isobiuret-Derivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. R steht in dieser Formel bevorzugt für diejenigen Reste, welche bereits für die neuen Verbindungen der Formel (II) als bevorzugt genannt wurden.

- 25 Im einzelnen seien folgende Verbindungen der Formel (III) genannt:
 5-[4-(4-Phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dichlor-4-(4-cyano-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dichlor-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dimethyl-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3-Chlor-4-(4-trifluoromethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3-Methoxy-4-(4-trifluoromethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 5-[2-Chlor-4-(4-trifluoromethylthio-phenoxy)-phenyl]- und 5-[3-Methyl-4-(5,6-dichlor-2-benzthiazolyloxy)-phenyl]-1-methoxycarbonyl-2-methyl-1-isobiuret;

- 5 -1-Ethoxycarbonyl-2-methyl-1-isobiuret und -1-n-propoxy-carbonyl-2-methyl-1-isobiuret.

Die Verbindungen der Formel (III), in welcher R für die-
jenigen Reste steht, die für die neuen Verbindungen der
10 Formel (II) genannt wurden und R¹⁰ für C₁-C₄-Alkoxy steht,
sind neu. Sie lassen sich gemäß dem Verfahren (5) (oben)
herstellen (siehe weiter unten).

Das erfindungsgemäße Verfahren (3) zur Herstellung der
15 neuen Verbindungen der Formel (II) wird bevorzugt unter
Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt.

Hierzu gehören insbesondere aliphatische und aromatische,
gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie Pen-
20 tan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Li-
groin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylen-
chlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol,
o-Dichlorbenzol, Alkohole wie Methanol, Ethanol, n-Propa-
nol und Isopropanol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether,
25 Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydro-
furan und Dioxan, Ketone, wie Aceton, Methylethyl-, Me-
thylisopropyl- und Methylisobutylketon, Ester wie Essig-
säuremethylester und -ethylester, Nitrile, wie z.B. Aceto-
nitril und Propionitril, Amide, wie z.B. Dimethylformamid,
30 Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon, sowie Dimethyl-
sulfoxid, Tetramethylensulfon und Hexamethylphosphorsäu-
retriamid. Bevorzugt werden Alkohole, wie Methanol oder
Ethanol als Verdünnungsmittel eingesetzt.

35

5 Das erfindungsgemäße Verfahren (3) wird im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 0°C und 140°C durchgeführt. Bevorzugt wird der Bereich zwischen 20°C und 120°C. Die Umsetzungen werden im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt.

10

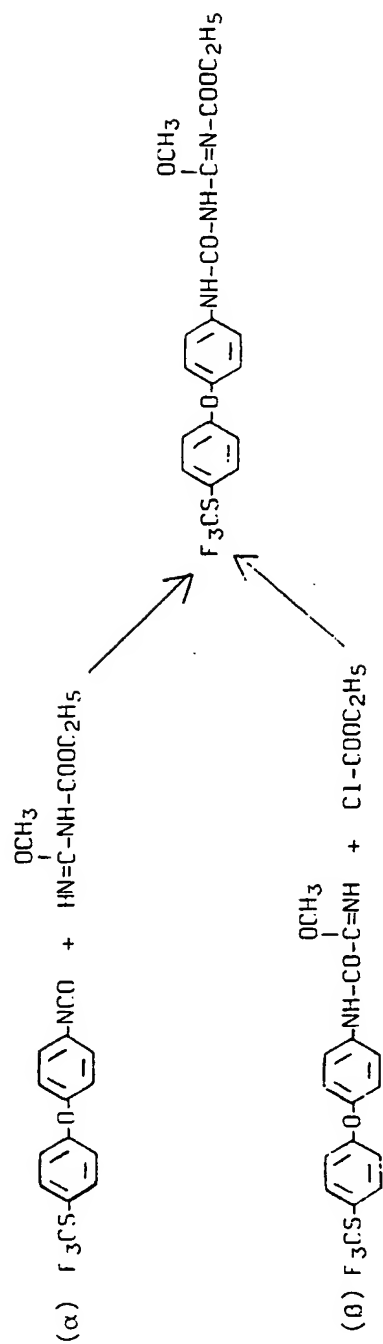
Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (3) setzt man auf 1 Mol der Verbindung der Formel (III) im allgemeinen 1 bis 3 Mol, vorzugsweise 1 bis 2 Mol, einer starken Base ein.

15

Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart einer starken Base durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird kurz aber auch mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Danach wird mit einem organischen Lösungsmittel, wie z.B. Ether gewaschen oder gießt das Reaktionsprodukt in Wasser und säuert mit einer Mineralsäure, wie z.B. Salzsäure an. Anschließend wird nach üblichen Methoden aufgearbeitet.

25 Verwendet man beispielsweise für das erfindungsgemäße Verfahren (5) als Ausgangsstoffe 4-(4-Trifluormethylthio-phenoxy)-phenylisocyanat und 3-Ethoxycarbonyl-2-methyl-1-isoharnstoff oder 4-[4-(4-Trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-2-methyl-1-isobiuret und Chlorameisensäureethylester, so können die Reaktionen durch die folgenden Formelschemata wiedergegeben werden:

35



5 Die als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren
(5α) einzusetzenden Isocyanate sind durch die Formel (IV)
allgemein definiert. In dieser Formel steht R bevorzugt
für diejenigen Reste, welche bereits für die neuen Verbin-
dungen der Formel (II) als bevorzugt genannt wurden.

10

Im einzelnen seien folgende Verbindungen der Formel (IV)
genannt:

4-(4-Phenoxy)-phenyl-, 3,5-Dichlor-4-(4-cyano-phenoxy)-
phenyl-, 3,5-Dichlor-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-
15 phenyl-, 3,5-Dimethyl-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phe-
noxy)-phenyl-, 3-Chlor-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-
phenyl-, 3-Methoxy-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phe-
nyl-, 2-Chlor-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl- und
3-Methyl-4-(5,6-dichlor-2-benzthiazolyloxy)-phenyl-iso-
20 cyanat.

Die Verbindungen der Formel (IV) sind bekannt (vgl. z.B.
DE-OS 3 217 619, DE-OS 3 217 620 und DE-OS 3 309 987).

25 Die weiterhin als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße
Verfahren (5α) einzusetzenden Isoharnstoffe oder deren
Säureadditionssalze sind durch die Formel (V) allgemein
definiert. In dieser Formel steht R¹⁰ bevorzugt für C₁-
C₄-Alkyl. Zu den Säureadditionssalzen, die eingesetzt
30 werden können gehören bevorzugt Sulfate, Hydrogensulfate

35

5 und die Hydrohalogeniden, wie Hydrochlorid, Hydrobromid sowie das Hydroiodid.

Als Beispiele für die Verbindungen der Formel (V) seien genannt:

10 3-Methoxy-, 3-Ethoxy-, 3-n-Propoxy-, 3-i-Propoxy- und 3-n-Butoxy-carbonyl-2-methyl-1-isoharnstoff und ihre entsprechenden Säureadditionsverbindungen mit Chlorwasserstoffsäure, Bromwasserstoffsäure und Schwefelsäure.

15 Die Verbindungen der Formel (V) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (vgl. z.B. DE-OS 2 263 805, DE-OS 2 416 664 und JP-PS 53 033 865 (Derwent Ref. A 19/34 167)).

20 Die als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren (5ß) einzusetzenden Isobiurete sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel steht R bevorzugt für diejenigen Reste, welche bereits für die neuen Verbindungen der Formel (II) als bevorzugt genannt wurden.

25

Im einzelnen seien folgende Verbindungen der Formel (VI) genannt:

5-[4-(4-Phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dichlor-4-(4-cyano-
30 phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dichlor-4-(4-trifluormethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3,5-Dimethyl-4-(4-trifluoromethylsulfonyl-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3-Chlor-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 5-[3-Methoxy-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-, 5-[2-Chlor-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]- und

35

5 5-[3-Methyl-4-(5,6-dichlor-2-benzthiazolyloxy)-phenyl]-
2-methyl-3-isobiuret.

Die Verbindungen der Formel (VI), in welcher R für dieje-
nigen Reste steht, die für die neuen Verbindungen der For-
10 mel (II) genannt wurden, sind neu. Sie lassen sich gemäß
dem erfindungsgemäßen Verfahren (7) (oben) herstellen
(siehe weiter unten).

Die weiterhin als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße
15 Verfahren (5β) einzusetzenden Halogenide sind durch die
Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel steht
Hal bevorzugt für Chlor und R¹⁰ bevorzugt für C₁-C₄-
Alkyl.

20 Als Beispiele für die Verbindungen der Formel (VII) seien
genannt:
Chlorameisensäuremethylester, Chlorameisensäureethylester,
Chlorameisensäure-n-propylester und Chlorameisensäure-n-
butylester.

25 Die Verbindungen der Formel (VII) sind allgemein bekannte
Verbindungen der organischen Chemie.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (5α) und (5β) zur Herstel-
30 lung der neuen Verbindungen der Formel (III) werden bevor-
zugt unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt.
Als Verdünnungsmittel kommen praktisch alle inerten orga-
nischen Lösungsmittel in Frage.

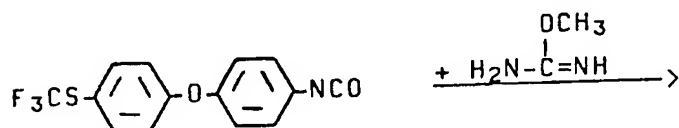
35

- 5 Hierzu gehören insbesondere aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol, 10 o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methylethyl-, Methylisopropyl- und Methylisobutylketon, Ester wie Essigsäuremethylester und -ethylester, Nitrile wie z.B. Acetonitril und Propionitril, Amide, wie z.B. Dimethylformamid, 15 Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon, sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylsulfon und Hexamethylphosphorsäuretriamid.
- 20 Die Verfahren (5α) und (5β) können gegebenenfalls in Gegenwart von Säureakzeptoren durchgeführt werden. Als Säureakzeptoren können alle üblichen Säurebindemittel Verwendung finden. Besonders bewährt haben sich Alkalicarbonate und -alkoholate, wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- 25 und Kaliummethyllat bzw. -ethylat, Alkalihydroxide, wie Natriumhydroxid, ferner aliphatische, aromatische oder heterocyclische Amine, beispielsweise Triethylamin, Trimethylamin, Dimethylanilin, Dimethylbenzylamin und Pyridin.
- 30 Die erfindungsgemäßen Verfahren (5α) und (5β) werden im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 0°C und 120°C durchgeführt. Bevorzugt wird der Bereich zwischen 20°C und 100°C. Die Umsetzungen werden im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt.
- 35

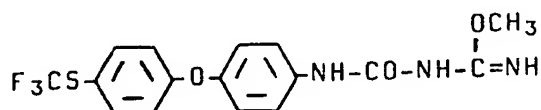
5 Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (5α) und (5β) werden die Ausgangsstoffe gewöhnlich annähernd in äquimolaren Mengen eingesetzt. Ein Überschuß der einen oder anderen Reaktionskomponente bringt keine wesentlichen Vorteile. Die Umsetzungen werden im allgemeinen in einem
 10 geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säurekzeptors durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung geschieht nach üblichen Methoden.

15 Verwendet man beispielsweise für das erfindungsgemäße Verfahren (7) als Ausgangsstoffe 4-(4-Trifluormethylthio-phenoxy)-phenylisocyanat und 2-Methylisoharnstoff, so kann die Reaktion durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

20



25



30

Die als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren (7) einzusetzenden Isocyanate der Formel (IV) sind bereits bei der Beschreibung des Verfahrens (5α) genannt worden.

35 Weiterhin wird für das erfindungsgemäße Verfahren (7) 2-Methylisoharnstoff der Formel (VII) bzw. das entsprechende

- 5 Säureadditionssalz als Ausgangsverbindung eingesetzt. Die bevorzugt eingesetzten Säureadditionssalze sind bereits bei der Beschreibung der Verbindungen der Formel (V) genannt worden.
- 10 2-Methylisoharnstoff der Formel (VII) und die entsprechenden Säureadditionssalze sind bekannte Verbindungen der organischen Chemie.
- 15 Als Verdünnungsmittel für das erfindungsgemäße Verfahren (7) kommen vorzugsweise die Verdünnungsmittel in Frage, die bereits für die erfindungsgemäßen Verfahren (5α) und (5β) angegeben worden sind.
- 20 Als Säureakzeptoren für das erfindungsgemäße Verfahren (7) kommen vorzugsweise die Säureakzeptoren in Betracht, die bereits für die erfindungsgemäßen Verfahren (5α) und (5β) angegeben worden sind.
- 25 Das erfindungsgemäße Verfahren (7) wird im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 0°C und 120°C durchgeführt. Bevorzugt wird der Bereich zwischen 20°C und 100°C. Die Umsetzungen werden im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt.
- 30 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (7) werden die Ausgangsstoffe gewöhnlich annähernd in äquimolaren Mengen eingesetzt. Ein Überschuß der einen oder anderen Reaktionskomponente bringt keine wesentlichen Vorteile. Die Aufarbeitung geschieht nach üblichen Methoden.
- 35

5 Die Verbindungen der Form I (I), die nach dem rfindungs-
gemäßen Verfahren (1) leicht zugänglich sind, weisen eine
hervorragende coccidiostatische und eine ausgezeichnete
wachstumsfördernde Wirkung auf (vgl. z.B. DE-OS 2 413 722
und DE-OS 2 718 799).

10

15

20

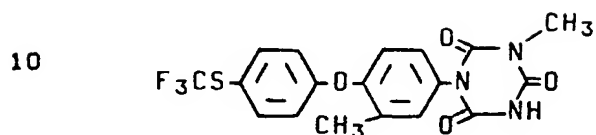
25

30

35

5 Herstellungsbeispiele

Beispiel 1



(Verfahren (1))

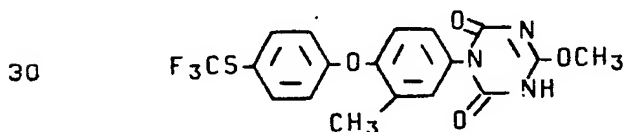
15

5 g (11,76 mMol) 1-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phen-
oxy)-phenyl]-4-methoxy-1,3,5-triazin-2,6(1H,5H)-dion ge-
löst in 50 ml Dekalin werden 4 Stunden unter Rückfluß er-
hitzt. Nach dem Abkühlen wird abfiltriert und aus Essig-
20 ester/Petrolether umkristallisiert.

Man erhält 3,7 g (76 % der Theorie) 1-[3-Methyl-4-(4-tri-
fluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-3-methyl-1,3,5-triazin-
2,4,6-trion vom Schmelzpunkt 191°C.

25

Beispiel 2



(Verfahren (3))

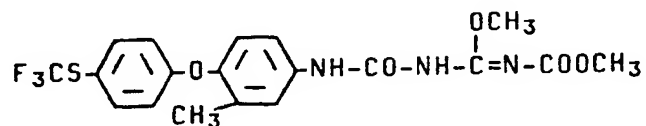
35

5 7,3 g (0,016 Mol) 5-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-
phenoxy)-phenyl]-1-methoxycarbonyl-2-methyl-1-isobiuret
werden in 80 ml absolutem Methanol gelöst, 0,87 g (0,016
Mol) Natriummethylat zugegeben und unter Rühren 6 Stunden
10 unter Rückfluß erhitzt. Nach dem Abkühlen wird auf Wasser
gegossen, mit Salzsäure angesäuert und das Reaktionspro-
dukt abfiltriert.

Man erhält 6,8 g (100 % der Theorie) 1-[3-Methyl-4-(4-tri-
fluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-4-methoxy-1,3,5-triazin-
15 2,6(1H,5H)-dion als weiße Kristalle vom Schmelzpunkt 189
- 190°C.

Beispiel 3

20



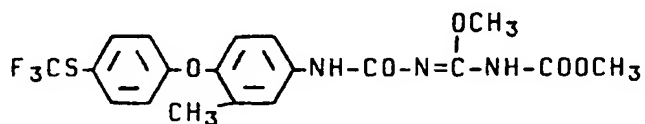
25 (Verfahren (5a))

23 g (0,175 Mol) 1-Methoxycarbonyl-2-methyl-1-isoharnstoff
gelöst in 250 ml Methylenchlorid und 57 g (0,175 Mol) 3-
Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenylisocyanat
30 gelöst in 100 ml Methylenchlorid werden unter Rühren so
lange auf 40°C erhitzt, bis kein Isocyanat mehr vorhanden
ist.

35

5 Nach Abdestillieren des Methylenchlorids erhält man in quantitativer Ausbeute 5-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-1-methoxycarbonyl-2-methyl-1-isobiuret vom Schmelzpunkt 98°C.

10 Beispiel 4



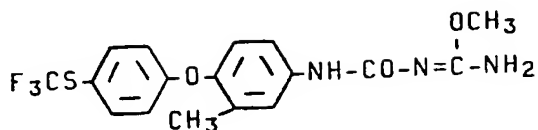
15

(Verfahren (58))

19,9 g (0,05 Mol) 5-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-2-methyl-3-isobiuret werden in 150 ml Methylenchlorid gelöst und 3,95 g (0,05 Mol) Pyridin zugegeben. Anschließend werden bei 5°C 4,73 g (0,05 Mol) Chlorameisensäureethylester zugetropft und 5 Stunden bei 20°C bis 25°C nachgerührt. Nach Zugabe von 200 ml Wasser wird die organische Phase abgetrennt, dreimal mit Wasser nachgewaschen, getrocknet und eingeeengt.

Man erhält 20,2 g (88,4 % der Theorie) 5-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenyl]-1-methoxycarbonyl-2-methyl-3-isobiuret vom Schmelzpunkt 97°C - 98°C.

35

5 Beispiel 5

10

(Verfahren (7))

16 g einer 50 %igen Natriumhydroxidlösung werden tropfen-
 15 weise zu 17,25 g 2-Methylisoharnstoff-hydrogensulfat in
 175 ml Wasser und 200 ml Methylenchlorid gegeben, wobei
 die Temperatur bei 5°C gehalten wird. Nach Entfernung der
 Kühlung werden zu dieser Mischung 32,5 g (0,1 Mol) 3-Me-
 thyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-phenylisocyanat zu-
 20 getropft und 6 Stunden bei 20°C - 25°C heftig gerührt. An-
 schließend wird die Methylenchloridphase abgetrennt, mit
 Natriumsulfat getrocknet und eingeeengt.

Nach Waschen mit Diisopropylether erhält man 37 g (93 %
 25 der Theorie) 5-[3-Methyl-4-(4-trifluormethylthio-phenoxy)-
 phenyl]-2-methyl-3-isobiuret vom Schmelzpunkt 87°C -
 88°C.

30

35